

Développement et validation d'une méthode de mesure directe du rapport $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ dans des combustibles irradiés en MC-ICPMS.

S. Mialle, A. Nonell, H. Isnard, C. Cruchet, C. Caussignac, M. Marie, A. Rincel

Le Laboratoire de développement Analytique Nucléaire Isotopique et Élémentaire (LANIE) du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA) Paris-Saclay est spécialisé dans l'analyse de haute précision d'échantillons de combustibles nucléaires. La caractérisation des radionucléides présents après irradiation est d'une importance majeure pour la validation des codes de neutronique ou l'accès aux données nucléaires de base. Ce travail porte sur l'analyse d'échantillons irradiés dans un réacteur expérimental constitués de pastilles d'oxydes d'uranium dopées en ^{236}U . Un des challenges analytiques sur ces échantillons précieux était la détermination du rapport $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ dans une gamme comprise entre 10 et 100 $\mu\text{mol/mol}$. La méthode usuellement employée au laboratoire pour cette détermination est composée de plusieurs étapes : une mesure en ICPMS quadripolaire de la concentration du neptunium en utilisant la méthode d'étalonnage externe, une mesure de l'isotopie de l'uranium et une détermination de la concentration en uranium total par la méthode de dilution isotopique combinée à la spectrométrie de masse à thermo-ionisation. Cette méthode, longue à mettre en œuvre en raison notamment des étapes de séparations chimiques qu'elle implique, permet d'obtenir des incertitudes de l'ordre du pourcent. Cependant, pour certains échantillons, son désavantage majeur provient du phénomène de sensibilité en abondance relativement élevée en ICPMS Q, aux alentours de 2 ppm, qui empêche la détermination précise des rapports proches de 10 $\mu\text{mol/mol}$. Afin de pouvoir mesurer ces échantillons, une méthode innovante a donc été développée au LANIE pour permettre la mesure directe de ce rapport élémentaire sur un ICPMS multi-collecteur. Celle-ci utilise la large gamme dynamique de l'instrument en mesurant les isotopes de l'uranium sur cages de Faraday et le neptunium sur un compteur d'ions équipé en amont d'un filtre à retard de potentiel (RPQ) qui permet d'améliorer la sensibilité en abondance d'un facteur 100 et donc d'améliorer la précision des mesures sur les plus faibles rapports $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$. Après une présentation détaillée de la méthode et des corrections associées, les résultats et leurs incertitudes obtenus seront présentés et seront comparés à la méthode usuelle à des fins de validation pour des rapports $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ variant de 30 à 100 $\mu\text{mol/mol}$. Pour ces ordres de grandeur, les incertitudes sont de l'ordre du pourcent, ce qui est comparable à la méthode par ICPMS quadripolaire combiné à l'IDMS. En revanche, pour les rapports plus faibles, le rapport $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ a été également déterminé avec des incertitudes de l'ordre du pourcent, ce qui n'aurait pas été possible par la méthode classique, élargissant la gamme de rapports $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ mesurables. Il est important de noter que cette méthode innovante a aussi permis de réduire considérablement le temps de manipulation et par conséquent le temps d'exposition aux irradiations des expérimentateurs.